

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

20.12.2004

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて  
いる事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed  
with this Office.

出願年月日 2003年12月26日  
Date of Application:

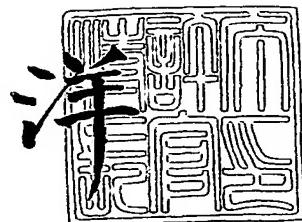
出願番号 特願2003-434027  
Application Number:  
[ST. 10/C]: [JP2003-434027]

出願人 株式会社カネカ  
Applicant(s):

2005年 1月28日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小川



BEST AVAILABLE COPY

**【書類名】** 特許願  
**【整理番号】** 1032212  
**【提出日】** 平成15年12月26日  
**【あて先】** 特許庁長官殿  
**【国際特許分類】** B32B 15/08  
 H05K 3/28

**【発明者】**  
**【住所又は居所】** 滋賀県大津市比叡辻 2-15-1-203  
**【氏名】** 菊池 剛

**【発明者】**  
**【住所又は居所】** 滋賀県大津市木の岡町 24-7-106  
**【氏名】** 辻 宏之

**【特許出願人】**  
**【識別番号】** 000000941  
**【住所又は居所】** 大阪府大阪市北区中之島3丁目2番4号  
**【氏名又は名称】** 鐘淵化学工業株式会社

**【代理人】**  
**【識別番号】** 100064746  
**【弁理士】**  
**【氏名又は名称】** 深見 久郎

**【選任した代理人】**  
**【識別番号】** 100085132  
**【弁理士】**  
**【氏名又は名称】** 森田 俊雄

**【選任した代理人】**  
**【識別番号】** 100083703  
**【弁理士】**  
**【氏名又は名称】** 仲村 義平

**【選任した代理人】**  
**【識別番号】** 100096781  
**【弁理士】**  
**【氏名又は名称】** 堀井 豊

**【選任した代理人】**  
**【識別番号】** 100098316  
**【弁理士】**  
**【氏名又は名称】** 野田 久登

**【選任した代理人】**  
**【識別番号】** 100109162  
**【弁理士】**  
**【氏名又は名称】** 酒井 將行

**【手数料の表示】**  
**【予納台帳番号】** 008693  
**【納付金額】** 21,000円

**【提出物件の目録】**  
**【物件名】** 特許請求の範囲 1  
**【物件名】** 明細書 1  
**【物件名】** 図面 1  
**【物件名】** 要約書 1  
**【包括委任状番号】** 9908051

**【書類名】特許請求の範囲****【請求項 1】**

耐熱性接着フィルムの少なくとも一面に金属箔を貼り合わせてなるフレキシブル積層板の製造方法であって、

前記耐熱性接着フィルムと前記金属箔とを一対の金属ロールの間において保護フィルムを介して熱ラミネートする工程と、前記保護フィルムを分離する工程とを含み、

前記保護フィルムの分子配向比が、1.0～2.0であることを特徴とするフレキシブル積層板の製造方法。

**【請求項 2】**

前記保護フィルムの搬送方向および幅方向についての分子配向比の変動幅が0.3mあたり0.1以下であることを特徴とする請求項1に記載のフレキシブル積層板の製造方法。

**【請求項 3】**

前記保護フィルムの200℃～300℃における線膨張係数 $\alpha$ が、前記金属箔の200℃～300℃における線膨張係数を $\alpha_0$ とするとき、 $(\alpha_0 - 10)$  ppm/℃以上 ( $\alpha_0 + 10$ ) ppm/℃以下であることを特徴とする請求項1または請求項2に記載のフレキシブル積層板の製造方法。

**【請求項 4】**

前記保護フィルムの25℃における引張弾性率が、2GPa以上10GPa以下であることを特徴とする請求項1～請求項3のいずれかに記載のフレキシブル積層板の製造方法。

**【請求項 5】**

前記保護フィルムの厚さが75μm以上であることを特徴とする請求項1～請求項4のいずれかに記載のフレキシブル積層板の製造方法。

**【請求項 6】**

前記保護フィルムが、非熱可塑性のポリイミドフィルムであることを特徴とする請求項1～請求項5のいずれかに記載のフレキシブル積層板の製造方法。

**【書類名】**明細書

**【発明の名称】**フレキシブル積層板の製造方法

**【技術分野】**

**【0001】**

本発明は、熱ラミネート工程を有するフレキシブル積層板の製造方法に関し、特に外観および金属箔除去後の寸法安定性を向上させたフレキシブル積層板の製造方法に関する。

**【背景技術】**

**【0002】**

従来から、ポリイミドフィルムなどの耐熱性接着フィルムの少なくとも一面に銅箔などの金属箔を貼り合わせてなるフレキシブル積層板が、携帯電話などの電気機器の中のプリント基板として用いられている。

**【0003】**

従来、フレキシブル積層板は、耐熱性接着フィルムに金属箔をアクリル系またはエポキシ系などの接着剤で貼り合わせて製造されていた。しかしながら、近年、上記アクリル系またはエポキシ系などの接着剤を用いずに、耐熱性接着フィルムと金属箔とを熱ラミネートして製造されたフレキシブル積層板が耐熱性および耐久性の観点から注目されている。

**【0004】**

上記熱ラミネートして製造されたフレキシブル積層板は、ポリイミド系の接着層を用いることから耐熱性に優れている。また、フレキシブル積層板が折り畳み式携帯電話の折り畳み部のヒンジの箇所に用いられる場合には、接着剤を用いたフレキシブル積層板では約3万回の折り畳みが可能であるのに対して熱ラミネートによるフレキシブル積層板では約10万回の折り畳みが可能となるため耐久性にも優れている。

**【0005】**

電気機器の製造工程において、フレキシブル積層板ははんだリフローなどの高温に曝される工程を経るため、フレキシブル積層板の熱的な信頼性を高める観点から、耐熱性接着フィルムとしては、接着層としてガラス転移温度( $T_g$ )が200°C以上のポリイミド系熱融着性層を有するフィルムが一般的に用いられている。したがって、耐熱性接着フィルムと金属箔とを熱ラミネートするためには、接着層となる熱融着性層の $T_g$ よりも高い、たとえば300°C以上の温度で熱ラミネートする必要があった。

**【0006】**

通常、熱ラミネート機は、熱ラミネート時における圧力の不均一性を緩和するために、熱ラミネートに用いられるロールの少なくとも一方にゴムロールが用いられている。しかしながら、ゴムロールを用いて300°C以上の高温で熱ラミネートすることは非常に困難であるため、一対の金属ロールを有する熱ラミネート機が用いられる。しかしながら、一対の金属ロールを用いて熱ラミネートをする場合には、ゴムロールを用いる場合と異なり、熱ラミネート時の圧力の均一性を保持するのが難しく、また、熱ラミネートの際に急激な温度変化が生じることから、フレキシブル積層板の外観にシワが発生してしまい、フレキシブル積層板の外観が悪くなってしまうという問題があった。そこで、耐熱性接着フィルムと金属箔を熱ラミネート機により貼り合わせる際に、一対の熱ロールとの間に保護フィルムを介在させることにより上記外観不良を改良する技術が提案されている(たとえば、特許文献1参照)。この技術によると、金属箔の外側に上記保護フィルムを介在させて金属箔と耐熱性接着フィルムとを熱ラミネートするため、上記保護フィルムによって、金属箔および耐熱性接着フィルムへの熱および圧力の集中を緩和するとともに、金属箔および耐熱性接着フィルムの膨張および収縮を抑制することにより、シワなどの外観不良の発生を抑制するものである。

**【0007】**

しかしながら、保護フィルムに用いられるポリイミドフィルムは、一般的に、分子配向の異方性があり、その異方性により上記金属箔および耐熱性接着フィルムの膨張および収縮に対する抑制力に違いが生じて、フレキシブル積層板にシワなどの外観不良が生じる場合があった。また、フレキシブル積層板の金属箔の少なくとも一部をエッチングして配線

および／または回路を形成する場合に、フレキシブル積層板の熱ラミネート後の残留応力によって、金属箔除去後の寸法変化率が大きくなるという問題があった。

【特許文献1】特開2001-129918号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

上記問題を解決するため、本発明は、外観および金属箔除去後の寸法安定性を向上させたフレキシブル積層板の製造方法を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0009】

本発明は、耐熱性接着フィルムの少なくとも一面に金属箔を貼り合わせてなるフレキシブル積層板の製造方法であって、耐熱性接着フィルムと金属箔とを一対の金属ロールの間において保護フィルムを介して熱ラミネートする工程と、保護フィルムを分離する工程とを含み、保護フィルムの分子配向比 (Molecular Orientation Ratio ; 以下MORという) が、1.0～2.0であることを特徴とするフレキシブル積層板の製造方法である。

【0010】

本発明にかかるフレキシブル積層板の製造方法においては、上記保護フィルムの搬送方向（以下、MD方向という）および幅方向（以下、TD方向という）についての分子配向比の変動幅が0.3mあたり0.1以下であることが好ましい。また、上記保護フィルムの200℃～300℃における線膨張係数 $\alpha$ が、金属箔の200℃～300℃における線膨張係数を $\alpha_0$ とするとき、 $(\alpha_0 - 10)$  ppm/℃以上 ( $\alpha_0 + 10$ ) ppm/℃以下であることが好ましい。また、上記保護フィルムの保護フィルムの25℃における引張弾性率は2GPa以上10GPa以下であることが好ましく、上記保護フィルムの厚さは75μm以上であることが好ましい。さらに、上記保護フィルム非熱可塑性のポリイミドフィルムであることが好ましい。

【発明の効果】

【0011】

上記のように、本発明によると、外観および金属箔除去後の寸法安定性を向上させたフレキシブル積層板の製造方法を提供することができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0012】

以下、本発明の実施の形態について説明する。なお、本願の図面において、同一の参照符号は、同一部分または相当部分を表わすものとする。

【0013】

図1に、本発明に用いられる熱ラミネート機の好ましい一例の模式的な概略図を示す。この熱ラミネート機は、金属箔2と耐熱性接着フィルム3とを保護フィルム1を介して熱ラミネートするための一対の金属ロール4と、保護フィルム1を分離するための分離ロール6とを含む。

【0014】

本発明にかかるフレキシブル積層板の一の製造方法は、図1を参照して、上記ラミネート機において、耐熱性接着フィルム3と金属箔2とが一対の金属ロール4の間で保護フィルム1を介して熱ラミネートされ、図2の拡大断面図に示すような耐熱性接着フィルム3と金属箔2とからなるフレキシブル積層板5に保護フィルム1がさらに貼り合わされた積層体7が形成され、この積層体7が冷却されながら複数のロールによって搬送される。さらに、分離ロール6によって保護フィルム1が積層体7から分離され、図3の拡大断面図に示すようなフレキシブル積層板5を製造するものである。

【0015】

ここで、本発明においては、保護フィルム1として、MORが1.0～2.0のフィルムが用いられる。分子配向の異方性が小さい保護フィルムを用いることにより、熱ラミネートの際の耐熱性接着フィルムおよび金属箔の膨張および収縮を全方向にわたって均等に

抑制することにより、フレキシブル積層板の外観および金属箔除去後の寸法安定性を向上させる。かかる観点から、保護フィルムのMORは、1.0～1.5が好ましく、1.0～1.3がより好ましい。

#### 【0016】

本発明において保護フィルムのMORとは、マイクロ波共振導波管中にフィルム面がマイクロ波の進行方向に垂直になるように保護フィルムを導入して、保護フィルムを回転させながら透過したマイクロ波の電場強度（以下、マイクロ波透過強度という）を測定したときのマイクロ波透過強度の最小値に対する最大値の比をいう。このようにして得られるMORは、フィルムの厚さに比例するため、本発明における保護フィルムのMORとは、厚さ75μmに換算したものをいうものとする。

#### 【0017】

保護フィルムのMORは、保護フィルムの製造条件によって適宜調整することができる。たとえば、保護フィルムがポリイミドフィルムである場合には、フィルム製膜の際に収縮を防止するために端部を固定する、またはフィルム製膜後にテンター炉内でのフィルムの拡縮を制御するもしくはテンター炉内の温度分布を制御するなどの方法により、ポリイミドフィルムのMORの値を1.0に近づけることができる。また、フィルム製膜の際に一方向に延伸するなどの方法により、MORの値を大きくすることができる。

#### 【0018】

本実施の形態において、保護フィルム1のMD方向およびTD方向についての分子配向比の変動幅が0.3mあたり0.1以下であることが好ましい。分子配向比の変動幅を小さくすることにより、熱ラミネートの際の耐熱性接着フィルムおよび金属箔の膨張および収縮を全方向にわたってさらに均等に抑制することにより、フレキシブル積層板の外観および金属箔除去後の寸法安定性をさらに向上させることができる。上記観点から、MD方向およびTD方向について分子配向比の変動幅は0.3mあたり0.08以下であることがより好ましく、0.05以下であることがさらに好ましい。

#### 【0019】

また、保護フィルム1の200℃～300℃における線膨張係数 $\alpha$ は、上記金属箔の200℃～300℃における線膨張係数を $\alpha_0$ とするとき、 $(\alpha_0 - 10)$  ppm/℃以上 ( $\alpha_0 + 10$ ) ppm/℃以下であることが好ましい。保護フィルムは、金属箔と接触した状態で熱ラミネートされるため、保護フィルムの線膨張係数 $\alpha$ と金属箔の線膨張係数 $\alpha_0$ との差が大きいとフレキシブル積層板の残留応力が大きくなる。かかる観点から、保護フィルムの線膨張係数は、 $(\alpha_0 - 5)$  ppm/℃以上 ( $\alpha_0 + 5$ ) ppm/℃以下であることがより好ましい。

#### 【0020】

また、保護フィルム1の25℃における引張弾性率は、2GPa以上10GPa以下であることが好ましい。引張弾性率が2GPa未満であると熱ラミネートの際の張力によって保護フィルムが伸びる可能性があり、10GPaを超えると保護フィルムが硬くなり熱ラミネートの際の金属箔および耐熱性接着フィルムへの熱および圧力の集中を緩和する効果が損なわれる可能性がある。かかる観点から、保護フィルムの25℃における引張弾性率は、4GPa以上6GPa以下であることがより好ましい。

#### 【0021】

また、保護フィルム1の厚さは75μm以上であることが好ましい。保護フィルムの厚さが75μm未満であると、熱ラミネートの際の金属箔および耐熱性接着フィルムへの熱および圧力の集中を緩和する効果が小さくなる。かかる観点から、保護フィルムの厚さは125μm以上であることがより好ましい。一方、保護フィルムの厚さは225μm以下であることが好ましい。保護フィルムの厚さが225μmを超えると、熱ラミネートの際に熱ロールからの熱が伝わりにくい、熱ラミネート後の保護フィルム分離の円滑さが損なわれるなどの支障が生じる可能性がある。

#### 【0022】

また、保護フィルム1には、特に制限はないが、等方的な分子配向を得ることができる

、すなわちMORを1.0に近づけることができる樹脂フィルムが好ましく、さらに耐熱性、耐久性などのバランスに優れる点から非熱可塑性のポリイミドフィルムであることがより好ましい。ここで、本発明において、非熱可塑性のポリイミドフィルムとは、熱硬化性ではないがラミネート温度において可塑性を示さないポリイミドフィルムをいい、ガラス転位温度が分解温度より高いポリイミドフィルムに加えて、ガラス転位温度が分解温度より低くてもラミネート温度より高いポリイミドフィルムを含む。

### 【0023】

金属箔2としては、たとえば、銅箔、ニッケル箔、アルミニウム箔またはステンレススチール箔などが用いられる。金属箔2は単層で構成されていてもよく、表面に防錆層や耐熱層（たとえば、クロム、亜鉛、ニッケルなどのメッキ処理による層）が形成された複数の層で構成されていてもよい。中でも、金属箔2としては、導電性およびコストの観点から、銅箔を用いることが好ましい。また、銅箔の種類としては、たとえば圧延銅箔、電解銅箔またはHTE銅箔などがある。また、金属箔2の厚みが薄いほどプリント基板となるフレキシブル積層板における回路パターンの線幅を細線化できることから、金属箔2の厚みは35μm以下であることが好ましく、18μm以下であることがより好ましい。

### 【0024】

また、耐熱性接着フィルム3としては、熱融着性を示す樹脂からなる単層フィルム、熱融着性を示さないコア層の両面または片面に熱融着性を示す樹脂からなる熱融着性層を形成した複数層フィルムなどを用いることができる。ここで、熱融着性を示す樹脂としては、熱可塑性ポリイミド成分で構成される樹脂が好ましく、たとえば、熱可塑性ポリイミド、熱可塑性ポリアミドイミド、熱可塑性ポリエーテルイミド、熱可塑性ポリエスチルイミドなどを用いることができる。中でも、熱可塑性ポリイミドおよび熱可塑性ポリエスチルイミドを用いることが特に好ましい。また、熱融着性を示さないコア層としては、熱融着性を示す樹脂からなる熱融着性層の強度を補強し、耐熱性を保持するものであれば特に限定されず、たとえば非熱可塑性ポリイミドフィルム、アラミドフィルム、ポリエーテルエーテルケトンフィルム、ポリエーテルスルホンフィルム、ポリアリレートフィルムまたはポリエチレンナフタレートフィルムなどを用いることができる。しかし、電気的特性（絶縁性）の観点から、非熱可塑性ポリイミドフィルムを用いることが特に好ましい。

### 【0025】

さらに、耐熱性接着フィルム3の200℃～300℃における線膨張率は、200℃～300℃における線膨張係数を $\alpha_0$ とするとき、 $(\alpha_0 - 10)$  ppm/℃以上 ( $\alpha_0 + 0$ ) ppm/℃以下であることが好ましい。熱ラミネートにより耐熱性接着フィルムは金属箔と融着されるため、耐熱性接着フィルムの線膨張係数と金属箔の線膨張係数 $\alpha_0$ との差が大きいとフレキシブル積層板の残留応力が大きくなる。かかる観点から、耐熱性接着フィルムの線膨張係数は、 $(\alpha_0 - 5)$  ppm/℃以上 ( $\alpha_0 + 5$ ) ppm/℃以下であることがより好ましい。

### 【0026】

また、金属ロール4による熱ラミネート温度は、耐熱性接着フィルム3の熱融着性を示す樹脂のガラス転移温度よりも50℃以上高い温度であることが好ましく、熱ラミネート速度を上げるために、耐熱性接着フィルム3のガラス転移温度よりも100℃以上高い温度であることがさらに好ましい。金属ロール4の加熱方式としては、たとえば、熱媒循環方式、熱風加熱方式または誘電加熱方式などがある。

### 【0027】

また、金属ロール4における熱ラミネート時の圧力（線圧）は49N/cm以上490N/cm以下であることが好ましい。熱ラミネート時の線圧が49N/cm未満である場合には線圧が小さすぎて金属箔2と耐熱性接着フィルム3との密着性が弱まる傾向にあり、490N/cmよりも大きい場合には線圧が大きすぎてフレキシブル積層板5に歪みが生じて金属箔2の除去後のフレキシブル積層板5の寸法変化が大きくなることがある。かかる観点から、熱ラミネート時の線圧は98N/cm以上294N/cm以下であることがより好ましい。金属ロール4の加圧方式としては、たとえば、油圧方式、空気圧方式ま

たはギャップ間圧力方式などがある。

**【0028】**

また、熱ラミネート速度には、特に制限はないが、生産性向上の観点から  $0.5 \text{ m/m in}$  以上であることが好ましく、 $1 \text{ m/m in}$  以上であることがさらに好ましい。

**【0029】**

また、熱ラミネート前に、急激な温度上昇を避ける観点から、保護フィルム1、金属箔2および耐熱性接着フィルム3に予備加熱を施すことが好ましい。ここで、予備加熱は、たとえば、保護フィルム1、金属箔2および耐熱性接着フィルム3を熱ロール4に接触させることによって行なうことができる。

**【0030】**

また、熱ラミネート前に、保護フィルム1、金属箔2および耐熱性接着フィルム3の異物を除去する工程を設けることが好ましい。特に、保護フィルム1を繰り返し用いるためには、保護フィルム1に付着した異物の除去が重要となる。異物を除去する工程としては、たとえば、水や溶剤などを用いた洗浄処理や粘着ゴムロールによる異物の除去などがある。中でも、粘着ゴムロールを用いる方法は、簡便な設備である点から好ましい。

**【0031】**

さらに、熱ラミネート前に、保護フィルム1および耐熱性接着フィルム3の静電気を除去する工程を設けることが好ましい。静電気を除去する工程としては、たとえば除電エアによる静電気の除去などがある。

**【実施例】**

**【0032】**

以下、実施例および比較例に基づいて、本発明をより具体的に説明する。なお、実施例および比較例において、MOR、線膨張率、外観、寸法変化率は以下のようにして測定または評価した。

**【0033】**

**[MOR]**

保護フィルムのMOR測定は、KSシステムズ社製マイクロ波分子配向計MORA2012A型により行なった。まず、サンプルとなる保護フィルムを、マイクロ波の進行方向にフィルム面が垂直になるようにマイクロ波共振導波管中に挿入し、この保護フィルムを回転させながら透過したマイクロ波の電場強度（以下、マイクロ波透過強度という）を測定した。ここで、MORは、マイクロ波透過強度の最小値に対する最大値の比であり、下式（1）により、算出した。すなわち、MORの値が1に近いほど分子配向が等方的であり、MORの値が大きいほど分子配向が異方的であることを示す。なお、マイクロ波透過強度が最小となる方位が分子配向の主軸となる。

**【0034】**

$$\text{MOR}_t = (\text{マイクロ波透過強度の最大値}) / (\text{マイクロ波透過強度の最小値}) \quad (1)$$

しかし、かかるMORは、フィルムの厚さに比例する数値であるため、本発明におけるMORとして、厚さ  $75 \mu\text{m}$  のフィルムに換算したMOR<sub>75</sub>を用いた。この、MOR<sub>75</sub>は、厚さ  $t \mu\text{m}$  の保護フィルムのMOR測定値をMOR<sub>t</sub>とすると、下式（2）によって算出される。なお、上記MOR<sub>75</sub>の測定は、MD方向およびTD方向のそれぞれについて、0.3mの間隔をあけて、3点以上行なった。

**【0035】**

$$\text{MOR}_{75} = 1 + (\text{MOR}_t - 1) \times 75 / t \quad (2)$$

**[線膨張係数]**

線膨張係数とは、圧力一定のもとで、物体が熱膨張する時、その長さの相対変化量の温度変化量に対する割合をいい、本発明においては、 $\text{ppm}/\text{°C}$ の単位を用いて表示する。保護フィルム、耐熱性接着フィルムおよび金属箔の線膨張係数は、セイコーワンスツルメント社製熱機械的分析装置（商品名：TMA（Thermomechanical Analyzer）120C）により、窒素気流下、上昇温度  $10 \text{ °C}/\text{min}$  にて、 $10 \text{ °C}$ から  $330 \text{ °C}$ の温度範囲で測定した後、 $200 \text{ °C} \sim 300 \text{ °C}$ の範囲内の平均値を求めた。

## 【0036】

## [外観]

フレキシブル積層板の外観は、目視により評価した。特に、フレキシブル積層板  $1\text{ m}^2$ あたりに発生したシワの個数を数えることにより、以下の評価基準により評価した。

- ◎・・・シワが全くない
- ・・・ $1\text{ m}^2$ あたりにシワが1個以下
- ×・・・ $1\text{ m}^2$ あたりにシワが2個以上

## [寸法変化率]

金属箔除去前後の寸法変化率は、JIS C 6481を参考にして、以下のように測定・算出した。すなわち、フレキシブル積層板から  $200\text{ mm} \times 200\text{ mm}$  のサンプルを切り出し、このサンプルにおいて  $150\text{ mm} \times 150\text{ mm}$  の正方形の四隅に直径  $1\text{ mm}$  の穴を形成した。このサンプルを  $20^\circ\text{C}$ 、60%RHの恒温恒湿室に12時間放置して調湿した後、上記4つの穴の距離を測定した。次に、フレキシブル積層板の金属箔をエッチング処理により除去した後、 $20^\circ\text{C}$  60%RHの恒温室に24時間放置した。その後、エッチング処理前と同様に、4つの穴についてそれぞれの距離を測定した。金属箔除去前の各穴の距離の測定値をD1、金属箔除去後の各穴の距離の測定値をD2として、下式(3)に基づいて寸法変化率を算出した。この寸法変化率の値が小さいほど、寸法安定性に優れていることを示す。

## 【0037】

$$\text{寸法変化率 (\%)} = \{(D_2 - D_1) / D_1\} \times 100 \quad (3)$$

## (実施例1)

図1に示す熱ラミネート機を用いてフレキシブル積層板を製造した。まず、保護フィルム1として、MOR<sub>75</sub>が1.07～1.10、MD方向およびTD方向について0.3mあたりのMOR<sub>75</sub>の変動幅が0.03、線膨張係数が12ppm/°C、引張弾性率が6GPa、厚さが75μm、幅が0.9mの非熱可塑性ポリイミドフィルムが巻きつけられているロールと、金属箔2として線膨張係数が19ppm/°C、厚さ18μmの銅箔が巻きつけられているロールと、耐熱性接着フィルム3として非熱可塑性のポリイミドフィルムからなるコア層の両面に熱可塑性ポリイミド樹脂層(ガラス転移温度: 240°C)を備えた25μmの厚みの三層構造の接着フィルムが巻きつけられているロールとを熱ラミネート機に設置した。ここで、保護フィルムのMOR測定は、幅端部から0.15mの点、およびこの点からTD方向に0.3m毎に3点、MD方向に0.3m毎に5点、合計15点について行ない、MOR<sub>75</sub>の範囲および0.3mあたりのMOR<sub>75</sub>の変動幅を算出した。

## 【0038】

次いで、これらのロールを回転させて、除電、異物の除去および予備加熱を行なった後に、非熱可塑性ポリイミドフィルム、銅箔および接着フィルムを一対の金属ロール4にて、熱ラミネート条件(温度: 360°C、線圧: 196N/cm、熱ラミネート速度: 1.5m/min)で熱ラミネートし、接着フィルムの両面に銅箔および非熱可塑性ポリイミドフィルムがこの順序で貼り合わされた五層構造の積層体7を作製した。

## 【0039】

そして、積層体7を複数のロールによって徐冷した後、分離ロール6により銅箔から非熱可塑性ポリイミドフィルムを分離して、フレキシブル積層板5を製造した。このフレキシブル積層板の外観評価および寸法測定を行なった。

## 【0040】

さらに、上記フレキシブル積層板の銅箔をエッチング処理により除去し、銅箔除去後の寸法を測定して、金属箔(銅箔)除去前後の寸法変化率(MD方向、TD方向)を算出した。これらの結果を表1に示す。表1に示すように、実施例1のフレキシブル積層板にはシワが全くなく、銅箔除去前後の寸法変化率は、MD方向が-0.03%、TD方向が+0.02%であった。

## 【0041】

## (実施例2)

保護フィルム 1 として、MOR<sub>75</sub>が1.07～1.10、MD方向およびTD方向について0.3mあたりのMOR<sub>75</sub>の変動幅が0.03、線膨張係数が16 ppm/°C、引張弾性率が4 GPa、厚さが75 μm、幅が0.9mの非熱可塑性ポリイミドフィルムを用いた他は、実施例1と同様にして、フレキシブル積層板を製造し外観評価を行ない、金属箔（銅箔）除去前後の寸法変化率を算出した。結果を表1に示す。実施例2のフレキシブル積層板にはシワが全くななく、銅箔除去前後の寸法変化率は、MD方向が-0.02%、TD方向が+0.02%であった。

#### 【0042】

##### (実施例3)

保護フィルム 1 として、MOR<sub>75</sub>が1.25～1.30、MD方向およびTD方向について0.3mあたりのMOR<sub>75</sub>の変動幅が0.05以下、線膨張係数が12 ppm/°C、引張弾性率が6 GPa、厚さが125 μm、幅が0.9mの非熱可塑性ポリイミドフィルムを用いた他は、実施例1と同様にして、フレキシブル積層板を製造し外観評価を行ない、金属箔（銅箔）除去前後の寸法変化率を算出した。結果を表1に示す。実施例3のフレキシブル積層板にはシワが全くななく、銅箔除去前後の寸法変化率は、MD方向が-0.02%、TD方向が+0.02%であった。

#### 【0043】

##### (実施例4)

保護フィルム 1 として、MOR<sub>75</sub>が1.25～1.30、MD方向およびTD方向について0.3mあたりのMOR<sub>75</sub>の変動幅が0.05以下、線膨張係数が16 ppm/°C、引張弾性率が4 GPa、厚さが75 μm、幅が0.9mの非熱可塑性ポリイミドフィルムを用いた他は、実施例1と同様にして、フレキシブル積層板を製造し外観評価を行ない、金属箔（銅箔）除去前後の寸法変化率を算出した。結果を表1に示す。実施例4のフレキシブル積層板にはシワが全くななく、銅箔除去前後の寸法変化率は、MD方向が-0.02%、TD方向が+0.01%であった。

#### 【0044】

##### (実施例5)

保護フィルム 1 として、MOR<sub>75</sub>が1.25～1.30、MD方向およびTD方向について0.3mあたりのMOR<sub>75</sub>の変動幅が0.05以下、線膨張係数が16 ppm/°C、引張弾性率が4 GPa、厚さが125 μm、幅が0.9mの非熱可塑性ポリイミドフィルムを用いた他は、実施例1と同様にして、フレキシブル積層板を製造し外観評価を行ない、金属箔（銅箔）除去前後の寸法変化率を算出した。結果を表1に示す。実施例5のフレキシブル積層板にはシワが全くななく、銅箔除去前後の寸法変化率は、MD方向が-0.02%、TD方向が+0.01%であった。

#### 【0045】

##### (実施例6)

保護フィルム 1 として、MOR<sub>75</sub>が1.42～1.50、MD方向およびTD方向について0.3mあたりのMOR<sub>75</sub>の変動幅が0.08以下、線膨張係数が16 ppm/°C、引張弾性率が4 GPa、厚さが75 μm、幅が0.9mの非熱可塑性ポリイミドフィルムを用いた他は、実施例1と同様にして、フレキシブル積層板を製造し外観評価を行ない、金属箔（銅箔）除去前後の寸法変化率を算出した。結果を表1に示す。実施例6のフレキシブル積層板にはシワが全くななく、銅箔除去前後の寸法変化率は、MD方向が-0.02%、TD方向が+0.01%であった。

#### 【0046】

##### (実施例7)

保護フィルム 1 として、MOR<sub>75</sub>が1.60～1.70、MD方向およびTD方向について0.3mあたりのMOR<sub>75</sub>の変動幅が0.10以下、線膨張係数が16 ppm/°C、引張弾性率が4 GPa、厚さが75 μm、幅が0.9mの非熱可塑性ポリイミドフィルムを用いた他は、実施例1と同様にして、フレキシブル積層板を製造し外観評価を行ない、金属箔（銅箔）除去前後の寸法変化率を算出した。結果を表1に示す。実施例7のフレキ

シブル積層板に発生したシワは  $1\text{m}^2$ あたり 1 個以下であり、銅箔除去前後の寸法変化率は、MD 方向が $-0.02\%$ 、TD 方向が $+0.01\%$ であった。

【0047】

(比較例 1)

保護フィルム 1 として、MOR<sub>75</sub>が 2.15 ~ 2.30、MD 方向および TD 方向について 0.3 mあたりの MOR<sub>75</sub>の変動幅が 0.15 以下、線膨張係数が 16 ppm/°C、引張弾性率が 4 GPa、厚さが 125 μm、幅が 0.9 m の非熱可塑性ポリイミドフィルムを用いた他は、実施例 1 と同様にして、フレキシブル積層板を製造し外観評価を行ない、金属箔(銅箔)除去前後の寸法変化率を算出した。結果を表 1 に示す。比較例 1 のフレキシブル積層板に発生したシワは  $1\text{m}^2$ あたり 2 個以上であり、銅箔除去前後の寸法変化率は、MD 方向が $-0.09\%$ 、TD 方向が $+0.07\%$ であった。

【0048】

【表1】

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6	実施例 7	比較例 1
MOR <sub>75</sub>	1.07~ 1.10	1.07~ 1.10	1.25~ 1.30	1.25~ 1.30	1.25~ 1.30	1.42~ 1.50	1.60~ 1.70	2.15~ 2.30
0.3mあたりのM OR <sub>75</sub> 変動幅	0.03 以下	0.03 以下	0.05 以下	0.05 以下	0.05 以下	0.08 以下	0.10 以下	0.15 以下
線膨張係数 (ppm/°C)	12	16	12	16	16	16	16	16
引張弾性率 (GPa)	6	4	6	4	4	4	4	4
厚さ (μm)	75	75	125	75	125	75	125	125
金属箔 (銅箔)	線膨張係数 (ppm/°C)	19	19	19	19	19	19	19
フレキシブル 積層板	外観	◎	◎	◎	◎	○	○	×
	銅箔除去前後の寸 法変化率 (%)	MD:-0.03 TD:+0.02	MD:-0.02 TD:+0.02	MD:-0.02 TD:+0.01	MD:-0.02 TD:+0.01	MD:-0.02 TD:+0.01	MD:-0.02 TD:+0.01	MD:-0.09 TD:+0.07

## 【0049】

表1より明らかなように、保護フィルムのMOR<sub>75</sub>が1.0~2.0であるフレキシブル積層板は、シワの発生が1m<sup>2</sup>あたり1個以下であり外観に優れるとともに、銅箔除去前後の寸法変化率は、MD方向およびTD方向のいずれの方向においても±0.05%の範囲内と極めて高い寸法安定性を示した。ここで、銅箔除去前後の寸法変化率が±0.05%の範囲内とは、フレキシブル積層板に微細配線を形成する場合においても寸法精度に

問題が生じない範囲である。また、保護フィルムのMOR<sub>75</sub>が1.0～1.5であるフレキシブル積層板には、シワの発生が認められず外観がさらに向上した。

#### 【0050】

なお、今回開示された実施の形態および実施例はすべての点で例示であって制限的なものではないと考えられるべきである。本発明の範囲は上記した説明ではなくて特許請求の範囲によって示され、特許請求の範囲と均等の意味および範囲内でのすべての変更が含まれることが意図される。

#### 【産業上の利用可能性】

#### 【0051】

上記のように、本発明は、外観および金属箔除去後の寸法安定性の向上を目的として、フレキシブル積層板の製造方法に広く利用することができる。

#### 【図面の簡単な説明】

#### 【0052】

【図1】本発明に用いられる熱ラミネート機の好ましい一例の概略図である。

【図2】本発明に用いられる積層体の模式的な拡大断面図である。

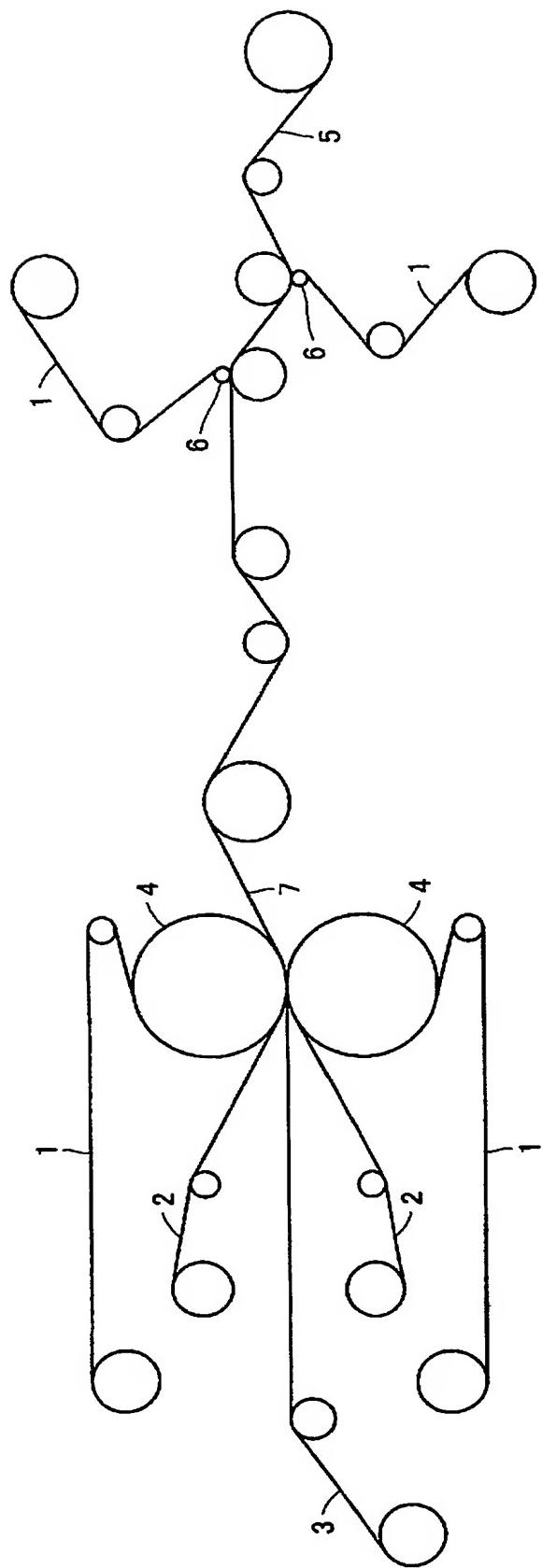
【図3】本発明によって製造されるフレキシブル積層板の模式的な拡大断面図である。

#### 【符号の説明】

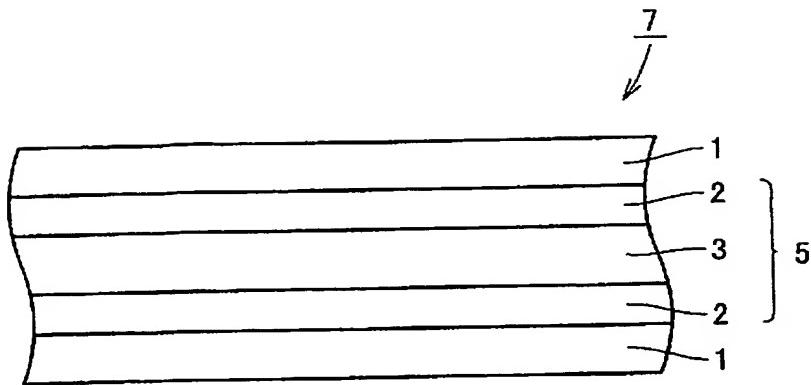
#### 【0053】

1 保護フィルム、2 金属箔、3 耐熱性接着フィルム、4 金属ロール、5 フレキシブル積層板、6 分離ロール、7 積層体。

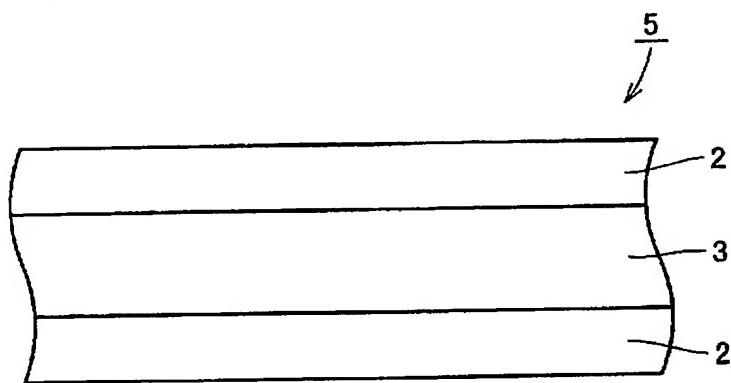
【書類名】 図面  
【図1】



【図2】



【図3】



【書類名】要約書

【要約】

【課題】 外観および金属箔除去後の寸法安定性を向上させたフレキシブル積層板の製造方法を提供する。

【解決手段】 耐熱性接着フィルム3の少なくとも一面に金属箔2を貼り合わせてなるフレキシブル積層板5の製造方法であって、耐熱性接着フィルム3と金属箔2とを一対の金属ロール4の間において保護フィルム1を介して熱ラミネートする工程と、保護フィルム1を分離する工程とを含み、上記保護フィルム1の分子配向比が、1.0～2.0であることを特徴とするフレキシブル積層板の製造方法。

【選択図】

図1

特願 2003-434027

## 出願人履歴情報

識別番号

[000000941]

1. 変更年月日 1990年 8月 27日

[変更理由] 新規登録

住所 氏名

大阪府大阪市北区中之島3丁目2番4号  
鐘淵化学工業株式会社

2. 変更年月日 2004年 9月 1日

[変更理由] 名称変更

住所 氏名

大阪府大阪市北区中之島3丁目2番4号  
株式会社カネカ

# **Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)**

International application number: PCT/JP04/019493

International filing date: 20 December 2004 (20.12.2004)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP  
Number: 2003-434027  
Filing date: 26 December 2003 (26.12.2003)

Date of receipt at the International Bureau: 10 February 2005 (10.02.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse